

**FUEL CELL STACK****Publication number:** JP5190187**Publication date:** 1993-07-30**Inventor:** FURANKU SHII SHIYORA; REONAADO JII  
MARIANOUSUKI; RANDEII JIEI PETORI; MAAKU JII  
ROUSON**Applicant:** INST GAS TECHNOLOGY**Classification:****- international:** *H01M8/02; H01M8/06; H01M8/24; H01M8/14;*  
*H01M8/02; H01M8/06; H01M8/24; H01M8/14; (IPC1-7):*  
*H01M8/02; H01M8/24***- European:** H01M8/06B2B; H01M8/24B2M**Application number:** JP19910100135 19910501**Priority number(s):** US19900517227 19900501**Also published as:**

EP0459940 (A1)

EP0459940 (B1)

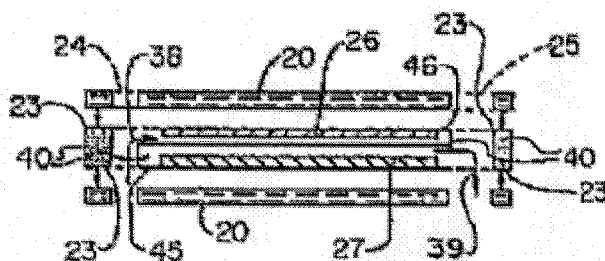
CA2040344 (C)

[Report a data error here](#)**Abstract of JP5190187**

**PURPOSE:** To provide a fuel cell stack in which a complete interior manifolding is constituted.

**CONSTITUTION:** A cathode 27 is installed as a gap from a separator plate 40 and composes a cathode chamber communicated with an oxidant manifold hole 25 and illustrated as an arrow 39.

An electrolyte 20 and a separator plate 40 are extended to the outer rim of a cell and compose a peripheral wet seal part 23 forming a peripheral wet seal between the electrolyte and the separator plate to seal fluid. A fuel manifold wet seal part 45 and an oxidant wet seal part 46 compose a manifold sealing by the electrolyte/separator plate wet seal and the fluid is preferably guided to an anode or cathode chamber on the opposite side to the separator plate 40.

Data supplied from the **esp@cenet** database - Worldwide

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平5-190187

(43) 公開日 平成5年(1993)7月30日

(51) Int.Cl. <sup>5</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
H 0 1 M 8/02	R	9062-4K		
	E	9062-4K		
8/24	R	9062-4K		

審査請求 有 請求項の数20(全 15 頁)

(21) 出願番号 特願平3-100135

(22) 出願日 平成3年(1991)5月1日

(31) 優先権主張番号 5 1 7 2 2 7

(32) 優先日 1990年5月1日

(33) 優先権主張国 米国 (U S)

(71) 出願人 591002016

インスティテュート・オブ・ガス・テクノロジー

INSTITUTE OF GAS TECHNOLOGY

アメリカ合衆国イリノイ州60616, シカゴ,  
サウス・ステート・ストリート 3424

(72) 発明者 フランク・シー・ショラ

アメリカ合衆国イリノイ州60067, プラ  
ティン, オールド・プラム・グローブ・ロー  
ド 5500

(74) 代理人 弁理士 湯浅 恭三 (外5名)

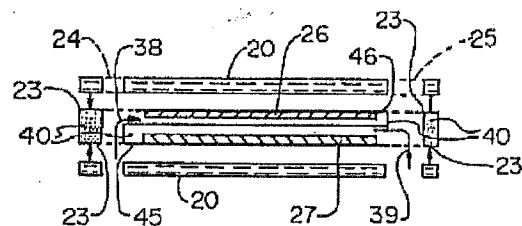
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 燃料セルスタック

(57) 【要約】 (修正有)

【目的】 完全内部マニホルディングを形成する燃料セルスタックを提供するものである。

【構成】 カソード27がセパレータープレート40から間隔を置かれて、オキシダントマニホルド孔25と連通する、矢印39によって指示されるカソード室を形成する。電解質20とセパレータープレート40はセルの外縁まで延在し、流体を封じ込めるための電解質とセパレータープレートとの間の周辺ウェットシールを形成する周辺ウェットシール部分23を形成する。燃料マニホルドウェットシール部分45とオキシダントウェットシール部分46は電解質/セパレータープレートウェットシールによってマニホルドシーリングを形成し、セパレータープレート40の反対側のアノードまたはカソード室に流体を好ましく案内する。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 各燃料セル単位がアノードとカソード；前記アノードの1面に接触する電解質と前記カソードのアノードに対向する面に接触する電解質；及び前記セル単位を前記のアノードとカソードとの間で分離するセパレータープレートにして、その1面と前記アノードとの間には、燃料ガス供給口と排出口とに気体連通しているアノード室を、その反対面と前記カソードとの間には、オキシダントガス供給口と排出口とに気体連通しているカソード室をそれぞれ形成する該セパレータープレート；を含んでなる複数の燃料セル単位からなるほぼ直方体の燃料セルスタックであって、  
前記電解質と前記セパレータープレートとは前記燃料セルスタックの端まで延在し；前記セパレータープレートは、それらセパレータープレートの各面上の前記電解質と接触するようにそれらセパレータープレートの周辺を完全に囲って延在してセル操作条件下でセパレータープレート／電解質ウェットシールを形成する平たい周辺ウェットシール構造を有し；前記電解質と前記セパレータープレートはそれぞれ複数の整列された穿孔を有し；前記セパレータープレート中の穿孔は、それらセパレータープレートの各面上の前記電解質と接触、延在してセル操作条件下でセパレータープレート／電解質ウェットシールを形成する平たいマニホールドウェットシール構造によって囲まれ、それによって前記セルスタックを通して延在する複数のガスマニホールドを形成し；前記延在マニホールドウェットシール構造を通り、前記マニホールドの1セットと前記セパレータープレートの1面上の前記アノード室との間で燃料ガスの連通を可能とする複数の管路、及び前記延在マニホールドウェットシール構造を通り、前記マニホールドの第2セットと前記セパレータープレートの他の面上の前記カソード室との間でオキシダントガスの連通を可能とする複数の管路を備え、それらによって前記燃料セルスタックの中で燃料ガスとオキシダントガスを各単位燃料セルへ及び各単位燃料セルから完全に内部マニホールディングし；前記燃料セルスタックにはその軸に沿って複数のリホーミング室が散在されており；前記リホーミング室は各々、一つは前記アノード室の一つに面する前記セパレータープレートの前記1面の形状を、第2は前記カソード室の一つに面する前記セパレータープレートの前記他の面の形状をそれぞれ有する2個のセパレーター／リホーマープレートによって形成されており；前記の2個のセパレーター／リホーマープレートはそれらの縁部で密封接合されて1つのリホーマー室を取り囲み；そして前記延在マニホールドウェットシール構造を通り、反応ガスとスチームの前記マニホールドの第3セットから前記リホーマー室までの連通を可能とする複数の管路、及び前記延在マニホールドウェットシール構造を通り、富化水素生成物ガスの燃料ガス供給マニホールドへの連通を可能とする複数の路管を備え、それ

らによって前記燃料セルスタック中で反応ガスとスチームを前記各リホーマー単位へ及び生成物ガスを前記各リホーマー単位から完全に内部マニホールディングする；ことを特徴とする前記燃料セルスタック。

【請求項2】 端部プレートがそれらの内面上に前記セパレータープレートと同じ輪郭を有し、前記燃料セルスタックの各端部上に半セルを形成している請求項1記載の燃料セルスタック。

【請求項3】 前記セパレータープレートとセパレーター／リホーマープレートとがプレス成形金属プレートである請求項2記載の燃料セルスタック。

【請求項4】 前記プレートの1面上の前記平たい周辺ウェットシール構造が前記プレートのプレス成形造形体（pressed shaping）を含んで前記プレートの1面上では前記延在周辺ウェットシールを形成し、前記プレートの他の面上では前記プレートの前記他の面に固定された、前記延在周辺ウェットシールを形成するプレス成形シート金属造形体（shape）を含む請求項3記載の燃料セルスタック。

【請求項5】 前記プレートの1面上の前記延在マニホールドウェットシール構造が前記プレートのプレス成形造形体を含んで前記プレートの1面上では前記延在マニホールドウェットシールを形成し、前記プレートの他の面上では前記プレートの前記他の面に固定された、前記延在マニホールドウェットシールを形成するプレス成形シート金属造形体を含む請求項4記載の燃料セルスタック。

【請求項6】 前記延在マニホールドウェットシール構造を通る前記管路が波形金属によって形成されている請求項5記載の燃料セルスタック。

【請求項7】 前記延在マニホールドウェットシール構造を通る前記管路がシート金属構造を通る孔である請求項5記載の燃料セルスタック。

【請求項8】 前記セパレータープレートとセパレーター／リホーマープレートとがプレス成形金属プレートである請求項1記載の燃料セルスタック。

【請求項9】 前記セパレータープレートとセパレーター／リホーマープレートとの1面上の前記平たい周辺ウェットシール構造が前記セパレータープレートとセパレーター／リホーマープレートのプレス成形造形体を含んで前記セパレータープレートとセパレーター／リホーマープレートとの前記1面上に前記延在周辺ウェットシールを形成し、前記セパレータープレートとセパレーター／リホーマープレートの他の面上では前記セパレータープレートとセパレーター／リホーマープレートの前記他の面に固定された、前記延在周辺ウェットシールを形成するプレス成形シート金属造形体を含む請求項1記載の燃料セルスタック。

【請求項10】 前記セパレータープレートとセパレーター／リホーマープレートとの1面上の前記延在マニホールドウェットシール構造が前記セパレータープレートと

3

セバレーター／リホーマープレートとセバレーター／リホーマープレートとの前記1面上に前記延在マニホルドウェットシールを形成し、前記セバレータープレートとセバレーター／リホーマープレートの他の面上では前記セバレータープレートとセバレーター／リホーマープレートの他の面に固定された、前記延在マニホルドウェットシールを形成するプレス成形シート金属造形体を含む請求項1記載の燃料セルスタック。

【請求項11】 前記延在マニホルドウェットシール構造を通る前記管路が波形金属によって形成される請求項1記載の燃料セルスタック。

【請求項12】 前記延在マニホルドウェットシール構造を通る前記管路がシート金属構造を通る孔である請求項1記載の燃料セルスタック。

【請求項13】 前記リホーマー室が約5～約10個の隣接燃料セル単位の群の間に散在する請求項1記載の燃料セルスタック。

【請求項14】 前記電解質がアルカリ金属炭酸塩からなる請求項1記載の燃料セルスタック。

【請求項15】 前記セバレータープレートとセバレーター／リホーマープレートとの1面上の前記平たい周辺ウェットシール構造が前記セバレータープレートとセバレーター／リホーマープレートのプレス成形造形体を含んで前記セバレータープレートとセバレーター／リホーマープレートとの前記1面上に前記延在周辺ウェットシールを形成し、前記セバレータープレートとセバレーター／リホーマープレートの他の面上では前記セバレータープレートとセバレーター／リホーマープレートの前記他の面に固定された、前記前記延在周辺ウェットシールを形成するプレス成形シート金属造形体を含む請求項14記載の燃料セルスタック。

【請求項16】 前記セバレータープレートとセバレーター／リホーマープレートとの1面上の前記延在マニホルドウェットシール構造が前記セバレータープレートとセバレーター／リホーマープレートのプレス成形造形体を含んで前記セバレータープレートとセバレーター／リホーマープレートとの前記1面上に前記延在マニホルドウェットシールを形成し、前記セバレータープレートとセバレーター／リホーマープレートの他の面上では前記セバレータープレートとセバレーター／リホーマープレートの他の面に固定された、前記前記延在マニホルドウェットシールを形成するプレス成形シート金属造形体を含む請求項15記載の燃料セルスタック。

【請求項17】 ほぼ直方体の燃料セルスタックであって、各燃料セル単位が、アノードとカソード；前記アノードの1面に接触する電解質と前記カソードのアノードに対向する面に接触する電解質；及び前記セル単位を前記のアノードとカソードとの間で分離するセバレータープレ

4

ートにして、その1面と前記アノードとの間には、燃料ガス供給口と排出口とに気体連通しているアノード室を、その反対面と前記カソードとの間には、オキシダントガス供給口と排出口とに気体連通しているカソード室をそれぞれ形成する該セバレータープレートを含んでなり、そして前記燃料ガス供給口と排出口とは前記燃料セルスタック内で完全に内部マニホルド化されている複数の燃料セル単位；各リホーミング室が、一つは前記アノード室の一つに面する前記セバレータープレートの前記1面の形状を、第2は前記カソード室の一つに面する前記セバレータープレートの前記他の面の形状をそれぞれ有する2個のセバレーター／リホーマープレートによって形成されており、前記の2個のセバレーター／リホーマープレートはそれらの縁部で密封接合されて1つのリホーマー室を取り囲んでいる、前記燃料セルスタックの軸に沿った複数のリホーミング室；並びに延在マニホルドウェットシール構造を通り、反応ガスとスチームの内部反応体ガスマニホルドから前記リホーマー室までの連通を可能とする複数の管路、及び延在マニホルドウェットシール構造を通り、富化水素生成物ガスの内部燃料ガス供給マニホルドへの連通を可能とする複数の管路であって、それらによって前記燃料セルスタック中で反応体ガスとスチームを前記各リホーマー単位へ及び生成物ガスを前記各リホーマー単位から完全に内部マニホルディングする該管路；を含んでなる前記燃料セルスタック。

【請求項18】 前記リホーマー室が約5～約10個の隣接燃料セル単位の群の間に散在する請求項17記載の燃料セルスタック。

【請求項19】 各燃料セル単位が、アノードとカソード；前記アノードの1面に接触する電解質と前記カソードのアノードに対向する面に接触する電解質；及び前記セル単位を前記のアノードとカソードとの間で分離するセバレータープレートにして、その1面と前記アノードとの間にはアノード室を形成し、その反対面と前記カソードとの間にはカソード室を形成する該セバレータープレートを含んでなる複数の燃料セル単位からなるほぼ直方体の燃料セルスタックでの発電方法であって、次の：燃料ガスとオキシダントガスを、前記燃料セルスタック中の各燃料セル単位へ及び各燃料セル単位から、複数の完全内部マニホルド管路を通して通過させる工程；ここで前記内部マニホルド管路はそれぞれ複数の整列された穿孔を有する前記電解質と前記セバレータープレートとによって形成され；前記の各穿孔は、それらセバレータープレートの各面上の前記電解質と接触、延在してセル操作条件下でセバレータープレート／電解質ウェットシールを形成する平たいマニホルドウェットシール構造によって囲まれ、それによって前記セルスタックを通して延在する複数のガスマニホルドを形成しており；前記延在マニホルドウェットシール構造を通り、前記マニホルドの1セットと前記セバレータープレートとの1面上の前

記アノード室との間で燃料ガスの連通を可能とする複数の管路、及び前記延在マニホルドウェットシール構造を通り、前記マニホルドの他方のセットと前記セパレータープレートとの他方の面上の前記カソード室との間でオキシダントガスの連通を可能にする複数の管路を備え、それらによって前記燃料セルスタックの中で燃料ガスとオキシダントガスとを各単位燃料セルへ及び各単位燃料セルから完全に内部マニホルディングしている；並びに炭化水素反応体ガスを前記燃料セルスタックの複数のリホーミング室に通す工程：ここでリホーミング室は各々、一つは前記アノード室の一つに面する前記セパレータープレートの前記1面の形状を、第2は前記カソード室の一つに面する前記セパレータープレートの前記他方の面の形状をそれぞれ有する2個のセパレーター／リホーマープレートによって形成されており、前記2個のセパレーター／リホーマープレートはそれらの縁部で密封接合されてリホーマー室を囲み、前記延在マニホルドウェットシール構造を通る管路が反応ガスとスチームの前記マニホルドの第3セットから前記リホーマー室までの連通を可能にしている；前記反応ガスをリホーミング触媒上に通して富化水素生成物ガスを形成する工程；及び前記富化水素生成物ガスを前記延在マニホルドウェットシール構造を通る管路に通す工程：ここで前記管路は富化水素生成物ガスの燃料ガス供給マニホルドへの連通を可能となし、それによって前記燃料セルスタック中で反応ガスとスチームを前記各リホーマー単位へ及び生成物ガスを前記各リホーマー単位から完全に内部マニホルディングする；各工程を含む方法。

【請求項20】 前記電解質がアルカリ金属炭酸塩である請求項19記載の方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】本発明は内部マニホルド形成 (manifolded) 及び内部リホーミング実施 (reforming) 燃料セルスタック [すなわち、燃料電池積重ね体 (fuel cell stack)] に関し、特に電解質と金属セパレータープレートとのみの間の長期間安定なウェットシールによって完全内部マニホルド形成セルスタックをシールし、アノード室から分離したリホーミング室を形成する方法及びプロセスに関する。

【0002】一般に燃料セル発電装置 (electrical output unit) は不活性なまたは二極性の電子伝導性鉄金属セパレータープレートによって分離された個々のセルの多重スタックから成る。個々のセルは一緒にサンドイッチ形状化され、単一スタック単位に固定されて、目的の燃料セルエネルギー出力を達成する。各個々のセルは一般にアノードとカソード電極、共通の電解質タイル (electrolyte tile)、及び燃料とオキシダントガス供給源を含む。燃料とオキシダントガスの両方はマニホルドを通して、セパレータープレートと電解質タイルとの間のそれらのそれ

ぞれの反応室 (reactant chamber) に導入される。燃料とオキシダントガスの分離を維持し、ガス漏出を阻止する及び／または最小にするための電解質と他のセル要素との間の接触面積はウェットシールとして公知である。早期の燃料セル故障の原因となる主な要因はウェットシール部分の腐食と疲労である。この故障は高温における腐食性電解質接触と、結晶内及び結晶間クラッキングによる構造弱体化を生じるセルの熱サイクル中の大きな温度変化に起因する、高い熱応力とによって促進される。このような故障は好ましくない燃料及び／またはオキシダントガス交差 (crossover) と、予定の酸化及び還元反応を妨げ、それによってセル発電の中断と場合によっては停止を生じるオーバーボード (overboard) ガス漏出をもたらし。約500℃～700℃の範囲内の燃料セル操作条件下では、熔融炭酸塩電解質は、その強度のために燃料セルハウジングとセパレータープレートに必要な鉄金属に対して非常に腐食性である。熔融炭酸塩電解質燃料セルのスタックの高温操作は、特に隣接物質の熱膨張係数が異なる場合に、ウェットシール部分での腐食と熱応力問題の両方を増強する。

【0003】本発明は、セル要素の設計によって燃料セル操作の長期間耐久性と安定性を与える電解質／金属ウェットシールを用いる方法で、集積スタックの個々のセルに対する燃料とオキシダントガスの完全内部マニホルディングを形成する。

【0004】本発明はまた、リホーミング触媒を害することなく、炭化水素含有燃料を内部セルリホーミングするための分離リホーミング室を形成する内部マニホルディングを可能にする。メタンを二酸化炭素と水素とにリホームする吸熱反応はセルスタック内で有利に実施される。

【0005】商業的に実施可能な熔融炭酸塩燃料セルスタックは、それぞれ8平方フィートのオーダーの平面面積を有するセルを約600個まで含む。このような個々のセルからスタックを形成する場合に、セパレータープレートが個々のセルを分離し、燃料とオキシダントガスはそれぞれ1セットのセパレータープレート中に導入され、燃料はセパレータープレートの1面と電解質マトリックスのアノード側との間に導入され、オキシダントはセパレータープレートの他の面と第2電解質マトリックスのカソード側との間に導入される。

【0006】燃料セル開発の重点は今まで、燃料セルスタックから物理的に分離可能なチャンネルマニホルドを用いる燃料とオキシダントガスの外部マニホルディングに置かれていた。しかし、各セルの入口と出口はセルスタックの外部にクランプされなければならない、それぞれの入口と出口マニホルドに対して開放されなければならない。電氣的短絡を阻止するために、金属マニホルドとセルスタックとの間に絶縁を用いる必要がある。外部

マニホルディングはマニホルド／マニホルドガスケット／セルスタック界面における適切なガスシールの維持と、セルスタックの可能な勾配に沿ったガスケット内の炭酸塩ポンピング (pumping) の防止とに重大な問題を有していた。セルスタックから金属マニホルドを絶縁する種々な組み合わせが用いられているが、気密性かつ電気絶縁性であり、高温の熔融炭酸塩燃料セル操作条件下で炭酸塩不透過性であるスライディングシール (sliding seal) を形成することが困難であり、満足できる解決法は得られていない。マニホルディングとシーリングの問題は、セルスタックに用いるセル数が多ければ多いほど、平面面積が大きければ大きいほど、重大になる。多数のセルを用いる場合には、スタックの高さに沿ってシール部分に炭酸塩を駆動する電力が増大し、セルの平面面積が増加する場合には、各要素の線状耐性とマニホルド／マニホルドガスケット／セルスタックの間でシールされる合わせ面を維持するための各要素の側面配列 (side alignment) を維持することが非常に困難になる。

【0007】600セルを含むセルスタックは約10フ  
ィート高さになることがあり、外部マニホルドの必要な  
剛性とセルスタック上にマニホルドを押し付けるために  
要するクランプ力の適用との重大な問題を有する。セル  
集積体操作条件とセル操作条件との間の温度勾配、異な  
る熱膨張率及びマニホルドに用いる材料の必要な強度の  
ために、狭い許容差と非常に困難な加工問題が存在す  
る。

【0008】通常、個々の熔融炭酸塩燃料セルのスタックはウェットシールを形成し、取り入れマニホルドと排出マニホルドを形成するために、セパレータプレート  
の周囲にスペーサーストリップを用いて、構成されている。燃料セルウェットシール部分を高温環境下でシールする種々な手段が下記特許に開示されている：米国特許第4, 579, 788号はウェットシールストリップが粉末冶金方法を用いて製造されることを教えている；米国特許3, 723, 186号は電解質自体が電解質とフレームまたはハウジングとの間に不活性な周辺シールを形成するためにその周辺の周囲領域において不活性物質から成ることを教えている；米国特許4, 160, 067号はウェットシール部分の燃料セルハウジングまたはセパレーター上に不活性物質を付着させるまたは燃料セルハウジングまたはセパレーター中に不活性物質を含浸させることを教えている；米国特許第3, 867, 206号は電解質飽和マトリックスと電極の電解質飽和周縁との間のウェットシールを教えている；米国特許第4, 761, 348号はアノードとカソードをそれぞれオキシダントガスと燃料ガスから単離するガスシーリング機能を形成するためのガス不透過性物質の周辺レールを教えている；米国特許4, 329, 403号は電極から内部電解質領域へ通るにつれて、熱膨張率が徐々に変化す

るグレード化 (graded) 電解質組成物を教えている；及び米国特許第3, 514, 333号は薄いアルミニウムシーリングガスケットの使用による高温燃料セルにおけるアルカリ金属炭酸塩電解質のハウジングを教えている。上記特許のいずれも燃料セルスタック内の不活性燃料とオキシダントの周囲のシーリングを扱っていない。

【0009】約150℃～220℃で操作するリン酸燃料セルの、セル要素の周辺の孔質物質の孔に炭化ケイ素及び窒化ケイ素を充填することによるガスシーリングは米国特許第4, 718, 727号によって教えられており、基板 (substrate plate) 縁の間隙スペースに含浸することによるガスシーリングは米国特許第4, 786, 568号と米国特許第4, 824, 739号によって教えられている。例えば米国特許第4, 259, 389号の開示による粒状不活性物質へのポリテトラフルオロエチレンの結合；米国特許第3, 012, 086号の開示によるポリエチレンのガスケット；及び燃料のみの内部マニホルディングに関する米国特許第3, 589, 941号の開示によるリングシールのような、低温電解セルで直面されるシーリング問題と腐食問題の解決方法は、高温熔融炭酸塩燃料セルには適さない。米国特許第4510213号は個々のセルのガスコンパートメントへの燃料とオキシダントのマニホルドを形成するためのセル単位の活性部分を囲むトランジションフレーム (transition frame) を教えており、このマニホルドはセパレーターもセルの電解質タイルも通過しない。トランジションフレームは隣接セル間の複雑な絶縁を必要とし、幾つかの分離した、複雑な要素から構成される。米国特許第4708916号は熔融炭酸塩燃料セルのための燃料の内部マニホルディングとオキシダントの外部マニホルディングとを教えており、この場合には数セットの燃料マニホルドが個々のセルの中央部分と対立端部とにおいて電極並びに電解質とセパレーターを通過して、短絡 (shortened) 燃料流路を形成する。端部燃料マニホルドはセパレータープレートの肥厚縁壁部分にあり、中央燃料マニホルドは肥厚中央部分を通過し、カソードを通過して延在する、炭酸塩含浸シーリングテープまたは分離シリンダー状流路インサートが設けられる。

【0010】セルの対立端部に沿った多重マニホルド孔を利用して、燃料ガスとオキシダントガスの並流と向流とを形成する内部マニホルディングも試みられている。これらの燃料マニホルドは対立端部に沿った拡大周辺ウェットシール部分に配置されるが、マニホルドは電解質の外部で複雑な構造であるかまたは電極の少なくとも一つを通過する。しかし、隣接マニホルド孔が燃料とオキシダントガスに対して用いられており、これは短いウェットシール部分を横切る短い流路を形成し、ガス漏出と必要な拡大周辺シール部分がセル活性部分を好ましくな

く減ずる。同様に、内部マニホルディングを形成する先行技術の試みは、セルの4縁全ての各々に拡大周辺ウェットシール部分に沿って多重マニホルド孔を用いて、交差流(cross flow)を形成しているが、この場合にも隣接する燃料とオキシダントマニホルドの同じような複雑な構造と孔の間の短い流路がガスの漏出を生じ、セルの活性部分をさらに減ずる。

【0011】燃料としてガス化生成物を用いる場合には、燃料セルスタック内での内部リホーミングによって、炭化水素成分をリホームして、燃料の水素含量を高めることが好ましい。しかし、通常のリホーミング触媒は活性部位が炭酸塩被膜によって覆われるために、熔融炭酸塩電解質によって害されることが公知である。「直接燃料セルのための内部リホーミング触媒の開発(Development of Internal Reforming Catalysts for the Direct Fuel Cell)」、ミカエル タージャニ(Michael Tarjanyi)、ローレンス ペッチ(Lawrence Paetsch)、ランドルフ バーナード(Randolph Bernard)、ホセイン ゲゼルーアヤフ(Hosein Ghezel-Ayagh)、1985 燃料セル セミナー、タクソン アリズ、1985年5月19~22日、177~181頁参照のこと。熔融炭酸塩燃料セルの長期間耐久性の失敗を生じる、他の既知問題には、孔質アノード構造の変形、例えば集電装置(current collector)、セパレータープレート等のようなアノード側ハードウェアの熔融炭酸塩電解質による腐食、それによる電解質損失、孔質アノードによるガス交差、及びアノードとカソードの溶解による電解質損失がある。これらの問題の一つ以上を解決して、燃料セルの長期間安定性と耐久性を与えることが多く試みられている

燃料セルのアノードコンパートメントへの燃料フィード流の水素含量を高めることは、幾つかの特許によって教えられている。米国特許第3,266,938号は複数の高温燃料セルを連続的に配置し、系列内の第1燃料セルのアノードコンパートメントからの使用済みガスをセルの外部で吸熱リホーミング反応によって触媒リホームして、追加の水素を形成し、次に系列内の第2セルのアノードコンパートメントに通し、第2燃料セルのアノードコンパートメントからの使用済みガスはセル外部での触媒発熱シフト反応に供給し、系列内の第3燃料セルのアノードコンパートメントに通すための水素をさらに製造することを教えている。リホーミング反応とシフト反応は燃料セルの外部で実施され、燃料セルのアノードコンパートメントへの燃料フィードへの水素含量を高める。米国特許第4,522,894号は液体炭化水素フィードの水素含量を触媒酸化とスチームリホーミングとによって高めることを教えており、この場合には酸化が

らの熱エネルギーを燃料セル外部でのリホーミングに利用して、燃料セルのアノードコンパートメントへの燃料フィード流の水素含量を高めている。米国特許第3,488,226号は熔融炭酸塩燃料セルのアノードコンパートメントへの燃料フィードの水素を高めるための液体炭化水素の低温、低圧スチームリホーミングを教えており、この場合にはリホーミングは燃料セルの外部で実施され、燃料セル発生熱のヒートシンクとして作用する。1実施態様では、リホーミング触媒が燃料セルアノード室に入れられる。いずれの配置においても、燃料セルからの廃熱は水素発生のための吸熱リホーミング反応に直接利用される。米国特許第4,702,973号は熔融炭酸塩燃料セルの二重コンパートメントアノード構造を教えており、このセルでは熔融炭酸塩電解質が汚染燃料ガスとリホーミング触媒から水素イオン孔質及び電解質非孔質金属ホイルによって分離される。

【0012】本発明は燃料セルスタック内で炭化水素燃料をリホーミングして、吸熱リホーミング反応のための熱エネルギーを形成し、燃料セルの発熱電気化学反応による加熱のために燃料セルスタックを好ましく冷却する完全内部マニホルド形成燃料セルスタックを提供する。本発明は特に、高温熔融炭酸塩燃料セルスタックでの使用に適し、リホーミング触媒の、熔融炭酸塩の場合には触媒を容易に害する電解質からの分離を可能にする。本発明の完全内部マニホルド形成燃料セルは平面要素を含むセル、特に、例えば固体酸化物燃料セルのような、他の高温燃料セルに適する。一般に長方形の燃料セルスタックは、アノードとカソードとを含む複数の燃料セル単位；前記アノードと1面において接触し、前記カソードと反対側面において接触する電解質；及び前記セルを前記アノードとカソードとの間で分離して、その1面と前記アノードとの間にアノード室を形成し、その反対面と前記カソードとの間にカソード室を形成するセパレータープレートから成る。燃料セル単位を積み重ね、各端部において半セルを形成するセパレータープレートと同じ内部輪郭を有する端部プレートを備え、クランプして、燃料セルスタックに硬質構造を与える。セルスタック内に、約5~約10個のセル単位群の間に分散して、リホーミング室を若干改良したセパレータープレートによって形成し、リホーミング室に内部反応ガスマニホルドから炭化水素燃料とスチームを供給し、リホーミング室内のリホーミング触媒上を通し、水素富化生成物ガスを燃料セルスタックの内部燃料マニホルドに供給する。本発明の燃料セルスタックでは、電解質とセパレータープレートとが同じ輪郭を有し、燃料セルスタックの縁まで延在するが、電極と集電装置は燃料セルスタックの縁まで延在しない。セパレータープレートは平たい周辺ウェットシール構造を有し、これはセパレータープレートの各面の周辺の全周囲において電解質と接触するまで延在して、セル操作条件下で連続周辺セパレータープレートノ

電解質ウェットシールを形成する。

【0013】電解質とセパレータープレートとは望ましい位置に複数の配向穿孔を有し、各セパレータープレート穿孔は平たいマニホルドウェットシール構造によって囲まれ、平たいマニホルドウェットシール構造はセパレータープレートの各面で電解質と接触するまで延在して、セル操作条件下で各穿孔を囲むセパレータープレート／電解質マニホルドウェットシールを形成して、各穿孔を通り、セルスタックを通して延在するガスマニホルドを形成する。延在マニホルドウェットシール構造を通る流路 (conduit) または孔はセパレータープレートの1面上で燃料マニホルドとアノード室との間の気体連絡を可能にし、延在マニホルドウェットシール構造を通る流路または孔はセパレータープレートの他の面上でオキシダントマニホルドとカソード室との間の気体連絡を可能にする。この構造は燃料セルスタック内の単位燃料セルの各々への及び単位燃料セルの各々からの燃料とオキシダントガスの完全内部マニホルド形成を可能にする。同様に、炭化水素反応ガスとスチームは燃料セルスタック全体に散在するリホーミング室に供給され、水素富化リホームド (reformed) 生成物ガスは各リホーミング室から燃料マニホルドに供給される。

【0014】端部プレートはそれらの内側においてセパレータープレートと同じ輪郭を有し、燃料セルスタックの各マニホルドセットからの供給と排出のための手段を備える。端部プレート接続部 (connection) における適当なマニホルドセットへの燃料ガス、オキシダントガス及び炭化水素反応ガスの供給と排出の外部手段は技術上公知の手段によって形成される。「マニホルドセット」とは、1個以上の燃料入口を形成する第1セット、1個以上の使用済み燃料出口を形成する第2セット、1個以上のオキシダント入口を形成する第3セット、1個以上の使用済みオキシダント出口を形成する第4セット、及び1個以上の反応ガス入口を形成する第5セットを意味する。マニホルドを形成する、セパレータープレートと電解質とを通る穿孔は円形、方形、長方形、三角形または他の好ましい形状とサイズを取りうる。このような各穿孔は単一穿孔と呼ばれるが、好ましいガス分配を生じるために、バフル (baffling) を含む。好ましいガス流量とセルの活性部分を横切る好ましいパターンとを形成するために必要に応じて、如何なる数のマニホルドをもセパレータープレートと電解質とに設けることができる。各マニホルド周囲のセパレータープレートと電解質との間に直接完全ウェットシールを形成し、隣接マニホルドの縁が少なくとも約0.25in. 離れていることが本発明において重要である。本発明はまた、内部マニホルドの領域外でもセパレータープレートと電解質の間に直接、連続周辺ウェットシールを形成する。

【0015】好ましい1実施態様では、本発明によるセ

パレータープレートは完全活性燃料セル部分に波形を有する薄いプレス金属プレートであり、1面では完全周辺ウェットシール構造とマニホルドウェットシール構造とを形成し、セパレータープレートの反対面ではセパレータープレートの反対面に溶接された直立 (upstanding) ウェットシール構造がセパレータープレートと電解質との間に完全周辺ウェットシールとマニホルドウェットシールを形成する。セパレータープレートと電解質との間に直接ウェットシールを形成するための延在ウェットシール部分の形成には、粉末冶金によって形成されるバー、ストリップ等のような、如何なる構造を用いられる。

【0016】好ましい1実施態様では、マニホルドとアノード室、カソード室並びにリホーミング室との間の気体連絡を可能にする、延在マニホルドウェットシール構造を通る流路または孔は適当な波形金属によって形成された開口であるか、または金属シートまたはバー構造を通過する孔でありうる。

【0017】本発明は平たい、薄いシート金属構造と電解質との間に単純なウェットシールを形成し、それによって1ガス流路の隣接ガス流路からのシーリングを保証する。これは例えば溶融炭酸塩燃料セルスタックのような、高温、腐食性燃料セルからの完全内部マニホルド化 (manifolded) ガス供給と除去の有効な実施手段を形成する。本発明の構造の使用は多重セルスタックに炭酸塩を供給する有効な、種々な手段をも形成する。

【0018】本発明の構造は炭化水素燃料ガスをリホームするために、燃料セルスタック中に散在した、完全内部マニホルド化リホーミング室を形成し、アノードコンパートメントに水素富化燃料を供給し、電気化学的発生熱エネルギーを利用して、燃料セルスタックを冷却しながらリホーミング反応を駆動する。

【0019】本発明は燃料セル要素、特にセパレータープレートの大量生産可能な形状とその費用効果的な製造とを可能にする。本発明の溶融炭酸塩燃料セル単位の使用は燃料セルスタックの集積と燃料セルスタックの種々なサイズの調整とを可能にする。

【0020】本発明はまた、内部リホーミングを行う完全内部マニホルド化燃料セルスタック、特に溶融炭酸塩燃料セルスタックを用いた、発電方法をも提供する。

【0021】本発明の他の特徴は、下記の本発明の詳細な説明から、図面を参照するならば、明らかになる。

【0022】図1は、本発明の原理を説明する、単一セルの対角線 (diagonal) に沿った分解側断面図であり；図2は本発明の1実施態様による燃料セルスタックの単一セル単位の分解斜視図であり；図3は本発明の1実施態様による燃料セルの断面側面図であり；図4は燃料マニホルド流路からアノードコンパートメントへの開口を示す単一セル単位の断面側面図であり；図5は



オキシダントマニホルド流路からカソードコンパートメントへの開口を示す、図4に示したセル単位の断面側面図であり；図6は本発明による完全マニホルド化燃料セルスタックのためのマニホルドプレートの他の実施態様の正面図であり；図7は図6に示したマニホルドプレートの反対面図であり；図8は図6に示した8-8に沿った拡大断面図であり；図9は図6に示した9-9に沿った拡大断面図であり；図10は図6に示した10-10に沿った拡大断面図であり；図11は本発明の1実施態様による内部リホーミング室を有する燃料セルスタック10の一部の分解斜視図である。

【0023】本発明は完全内部マニホルド化燃料セルスタックに関する。好ましい実施態様では、電解質タイルをマニホルド流路が貫通し、特定領域では、電解質がセパレータープレートと接触して、セルスタック内に流体を維持するための電解質／セパレータープレート周辺ウェットシールと、反応物コンパートメントを分離し、個々の熔融炭酸塩燃料セル内の反応物コンパートメント及び燃料セルスタック中に散在するリホーミング室へまたはから流体を案内するための電解質／セパレータープレートマニホルドシールとを形成する。本発明は、セパレータープレートの1面から延在するプレスシール部分とセパレータープレートの反対面から延在する薄いシート形とを有してシール部分を形成する薄いシート形セパレータープレートを用いるのが好ましい。薄いシート形シール部分は限定されたフレキシビリティと弾性とを有し、緻密なシーリングを形成する。

【0024】図1を説明すると、本発明による燃料セルスタックの単一セルの角から角への対角線に沿った分解断面図を示す、このセルスタックはセルスタックの完全に内部に燃料とオキシダントガスの流れを形成する。この実施態様によると、セルセパレータープレートと共にセルの縁まで延在する電解質の角部分にマニホルド孔が形成される。電解質とセパレータープレートとの接触によって電解質の周囲の各面上に通常のウェットシールが形成されることによって、流体の含有が維持される。マニホルド孔とアノードコンパートメントまたはカソードコンパートメントとの間の流体連絡を形成する好ましい開口を通して、好ましいガス流が得られ、通常の電解質／セパレータープレートウェットシールによってマニホルド孔のシーリングが形成される。

【0025】セパレータープレートと電解質タイルとの適合マニホルド孔は、燃料セルスタックの全高さに対して、ガス供給と排出のために連続的であるマニホルド流路を形成する。本発明によると、燃料セルスタック中の全セルに延在するマニホルド流路は単一外部開口から供給されるが、先行技術の外部マニホルド化燃料セルスタックは個々の燃料セルへの及びからの外部開口を必要とした。ガスは半セルとして作用する端部プレートを通して燃料セルスタックに供給され、他の半セルとして作

用する同様な端部プレートから排出される。

【0026】流体が燃料セルスタックに供給され、取り出される方法は多様に変化することができ、本発明に関する重要な点は、ガスシーリングがセパレータープレートの周辺の周囲とガスマニホルド領域との両方において個々のセルと、燃料セルスタック中に散在するリホーミング室との望ましい位置にガスを供給する要求に応じて、通常のウェットシール方法で電解質タイルとセパレータープレートとの間のシーリングによって形成されることである。

【0027】図1に示すように、電解質20とセパレータープレート40はセルの外縁まで延在し、ウェットシール部分23においてそれらの周辺の周囲を相互にシールされる。図1では、個々の熔融炭酸塩燃料セル単位はセパレータープレート40の1面から間隔を置いたアノード26によって、燃料マニホルド孔24によって供給され、矢印38によって指示されるアノード室を形成するように示される。

【0028】セパレータープレート40の他の面では、カソード27がセパレータープレート40から間隔を置かれて、オキシダントマニホルド孔25と連通する、矢印39によって指示されるカソード室を形成する。電解質20とセパレータープレート40はセルの外縁まで延在し、流体を封じ込めるための電解質とセパレータープレートとの間の周辺ウェットシールを形成する周辺ウェットシール部分23を形成する。燃料マニホルドウェットシール部分45とオキシダントウェットシール部分46は電解質／セパレータープレートウェットシールによってマニホルドシーリングを形成し、セパレータープレート40の反対側のアノードまたはカソード室に流体を好ましく案内する。シーリングのために付加的ガスケットは用いず、セル単位は炭酸塩テープの使用を含めて、広範囲の炭酸塩追加方法に適応可能である。炭酸塩テープを用いる場合には、炭酸塩テープと電解質マトリックスはセル縁まで延在し、セル間の間隔は炭酸塩テープの厚さに比例して、これらが溶融すると減少するが、全てのセル要素のシーリングと適合は常に維持される。炭酸塩テープ溶融前のセル加熱中に、各マニホルド孔24と25の周囲のシーリングは維持される、この理由は炭酸塩テープと電解質マトリックス（例えば、 $LiAlO_2$ ）が各シーリング表面に隣接するまで延在し、弾性バインダーを含むからである。炭酸塩溶融前に生じる、バインダー燃焼中に、ガス流は維持され、シーリングが得られる。バインダーが燃焼し、セル温度が炭酸塩の融点まで上昇すると、溶融炭酸塩が孔質 $LiAlO_2$ テープと電極に吸収される。セル間の間隔は炭酸塩テープが溶融すると減少するが、室温から約650℃の操作温度までの全ての段階において、セルシーリングは維持される。シール部分の薄いシート金属の限定されたフレキシビリティと弾性とはセルシーリングの確実な維持を助け

る。

【0029】図2は、セパレータープレート40、カソード27、カソード集電装置29、電解質20、アノード26及びアノード集電装置29を含む、本発明の1実施態様による熔融炭酸塩燃料セルスタックの燃料セル単位の分解斜視図である。セパレータープレート40と電解質20の両方はセルの縁まで延在し、周辺ウェットシール部分43においてセパレータープレート40の両面上のその全周辺の周囲にウェットシールを形成する。ウェットシール部分43はセパレータープレート40の一般面から上方と下方の両方に延在して、セパレータープレート40の両面で電解質20の周辺と接触することができる。セパレータープレート40と電解質20の両方は対応する燃料マニホルド孔24（供給用1個、排出用1個）とオキシダントマニホルド孔25（供給用1個、排出用1個）が貫通する。図2に示した実施態様では、セパレータープレート40と電解質20の両方はそれらの角部分においてのみマニホルド孔によって貫通され、マニホルド孔間の最大に可能な間隔を形成する。図2に示すように、セパレータープレート40と電解質20の各角にマニホルド孔を設けることが好ましい。図2のマニホルド孔はストレートな薄シートマニホルドウェットシール部分を容易に形成しやすい、好ましい三角形であるが、マニホルド孔は円形、長方形または他の任意の形状を取りうる。図2に示したマニホルド孔は単一開口であるが、この単一開口内に仕切りを任意に用いて、ガス流をセル反応物室に通して導くことができる。燃料マニホルドウェットシール部分45とオキシダントウェットシール部分46はセパレータープレート40の一般面から上方と下方の両方に延在して、セパレータープレート40の両面で電解質20と接触して、隣接電解質20とウェットシールを形成して、ガス流路を画定する。アノード26の表面は周辺ウェットシール43及びオキシダントマニホルドウェットシール46のレベルとほぼ同じであり、これらの部分においてセパレータープレート40と電解質20との間のウェットシール接触を形成する。セパレータープレート40の反対面では、カソード27の表面は周辺ウェットシール43のレベルとほぼ同じであり、これらの部分においてセパレータープレート40と電解質20との間に燃料マニホルドウェットシール45接触を形成する。

【0030】図2において最も良く分かるように、オキシダントマニホルド孔25はオキシダントマニホルドウェットシール46によってシールされ、オキシダント供給口48とオキシダント排出口48'によってカソード室（図示するように、セパレータープレートの上面に隣接）へ及びからのみのオキシダント流を形成し、アノード室へ及びからのガス流は阻止する、燃料マニホルド孔24は燃料マニホルドウェットシール45によってシールされ、燃料供給口47と燃料排出口47'によってア

ノード室（図示するように、セパレータープレートの下面に隣接）へ及びからのみの燃料流を形成し、カソード室へ及びからのガス流は阻止する。マニホルドウェットシールはストレートプレスシート金属構造として示すが、これらはガス流を妨げる任意の形状または構造を取りうる。マニホルドウェットシールは燃料マニホルド孔24とオキシダントマニホルド孔25との間に二重ウェットシールを形成する。

【0031】セパレータープレート40は望ましい物理的強度とガス分離を与える、適当な材料から構成される。多くのセルスタックでは、カソード面にステンレス鋼を用い、アノード面には鉄金属の腐食を避けるためにニッケルまたは銅を用いるバイメタルセパレータープレートを使用することが好ましい。セパレータープレートは、例えばタイプ300シリーズステンレス鋼合金のような、鉄合金から製造することもできる。セパレータープレートはガス室非反応性セパレーターを形成し、同時に内部荷重負担要素として燃料セルに構造強度を与えるという二重機能を果たす。強度と、電極に隣接した良好なガス循環とを可能にするために、波形断面形状のセパレータープレートを用いることが好ましいが、本発明の原理は、周辺ウェットシール部分を形成し、内部マニホルド孔の周囲にウェットシールを形成し、ガスを燃料セル操作の必要に応じて内部マニホルドへ及びから流動させるように構成された、平たいセパレータープレートにも適用可能である。燃料セルスタック内部セパレータープレートは約0.010inchオーダーの、非常に薄いシートであることが好ましい。

【0032】刊行物「効果的熱移動のための近代的設計 (Modern Designs For Effective Heat Transfer)」、アメリカンヒートリクライミング社、1270アベニューオブアメリカス、ニューヨーク、ニューヨーク10020、及び「スーパーチェンジャープレートアンドフレームヒートイクスチェンジャー (Superchanger Plate and Frame Heat Exchanger)」、トランター社、ウィッチタフォールズ、テキサス76307によって例示されるように、熱交換テクノロジーには薄い鍛造ステンレス鋼が用いられていた。これらの熱交換器は端部フレーム間に一緒にボルト止めされた、一連のガスケット化、型押しまたはプレス金属プレートを用いて、プレートの片面では高温媒体通過用チャンネルを形成し、プレートの他の面では低温媒体通過用チャンネルを形成する。しかし、燃料セルスタックセパレータープレートはシーリングと、熔融アルカリ金属炭酸塩燃料セル操作条件下での腐食及び異なるマニホルド輪郭、シーリング、また2種類の流体が分離した関係で隣接セパレータープレートの間を通過しなければならないので、流体連絡手段の非常に種々な問題を有する。熱交換では、1種類の流体の

みが隣接熱交換プレート間を通過する。しかし、本発明の燃料セルスタックの電極上の流体流動のテクノロジーは、ヘリンボーン、洗濯板、ストレート波形、混合波形のようなプレート熱交換器の設計技術とパターンを有利に利用することができる。

【0033】図3は本発明の1実施態様による周辺ウェットシール部分をより詳細に示す、この場合には薄シートセパレータープレート40が波形であり、穿孔29を有する、カソード27支持プレート28に隣接する波形の1面にピークを有し、セルのカソード面上に電解質20に隣接して存在する、平たい薄シートセパレータープレート44を有するように形成される。薄い金属ストリップ材料から形成されるセパレータープレートウェットシールストリップ41はセパレータープレートのアノード面に、溶接部42によって溶接されまたは他の方法で取り付けられて、セルのアノード側で電解質20に隣接して存在する、平たいセパレータープレートウェットシールストリップ ウェットシール部分43を形成する。セパレータープレートとウェットシールとの位置が逆になりうること、及びセパレーターウェットシールストリップ ウェットシール部分43とセパレーターウェットシール部分44との間隔が個々のセルの間隔要件を満たすように形成されうことは、容易に明らかである。

【0034】図4は燃料マニホルド24とアノード室との間の流路の断面図であり、この場合にはセパレータープレート40の下面と電解質20との間のセパレータープレート燃料マニホルドウェットシール部分45がカソード室への燃料流を阻止し、アノード26とセパレータープレート40の上面との間のアノード室へ燃料流を供給する。同様に、図5はオキシダントマニホルド25とカソード室との間の流路の断面図であり、この場合にはセパレータープレート40の上面と電解質20との間のセパレータープレートオキシダントマニホルドウェットシール部分44がアノード室へのオキシダント流を阻止し、カソード27とセパレータープレート40の下面との間のカソード室へオキシダント流を供給する。燃料とオキシダントの通路 (passage) はセパレータープレート40の波形によって、セパレータープレート40に固定されたストリップの孔によって、または任意の、ガス分配に適した他の手段によって形成される。

【0035】本発明によるセパレータープレートの他の実施態様を図6~10に示す。この実施態様では、燃料供給マニホルドとオキシダント供給マニホルドが薄シートセパレータープレートの中央部分を通して交互に配置され、分割ガス流と表面積の大きい、薄いセパレータープレートの大きい機械的安定性をもたらし、薄い金属セパレータープレートは上記と同様に構成され、活性部分のプレス波形が電極を支持し、適当なアノード及びカソードガス室容量を形成し、薄いセパレータープレート面から外方に延在するプレス部分 (pressed a

rea) がプレートの1面に薄プレートウェットシール部分を形成し、付着した、外方に延在する薄い成形シート金属ストリップがセパレータープレートの他の面にウェットシール部分を形成する。図6はセパレータープレートの上部または正面を示し、図7は同じセパレータープレートの逆の面を示す。セパレータープレート140の電気化学的に活性部分は、図9に最も良く示すように、波形であり、プレス周辺ウェットシール部分123は波形を越えて延在し、1セルの電解質と周辺ウェットシール部分123において接触し、セパレータープレート140の反対面の周辺に取り付けられたプレス薄金属ウェットシールストリップ141は波形を越えて延在し、隣接セルの電解質と周辺ウェットシール部分123において接触する。オキシダントマニホルド孔125は対立端部を通して燃料マニホルド孔124と交互に配置され、オキシダントマニホルド孔125Aはセパレータープレート140の中央部分に燃料マニホルド孔124Aと交互に配置される。これらの図に示すように、オキシダントマニホルド孔系列と燃料マニホルド孔系列はセパレータープレート140の対立端部に燃料とオキシダントとを供給し、セパレータープレート140の中央部分において燃料とオキシダントとを排出させる。図8に最も良く示すように、マニホルド孔125を通して供給されるオキシダントは、図6の矢印によって示すように、オキシダント供給口148を通してセパレータープレート140の活性表面に達する。オキシダントはカソードガスコンパートメントを形成する波形セパレータープレート140のチャンネルを通して、図6の矢印によって示すように、オキシダント出口158に達し、オキシダントマニホルド孔125Aに供給する。同様に、燃料は燃料マニホルド孔124から燃料供給口147に供給され、アノードガスコンパートメントを形成する波形セパレータープレート140のチャンネルを通して、図6の矢印によって示すように、燃料出口157に達し、燃料マニホルド孔124Aに供給する。

【0036】セパレータープレートの対立面上の燃料とオキシダントガスの共通線状流 (co-linear flow) は図6と7に、セパレータープレートの対立端部の供給マニホルドとセパレータープレートの中央部分の排出マニホルドと共に示す。同じセパレータープレートを用いて、プレートの対立面での逆の燃料とオキシダントガスの共通線状流が中央の燃料とオキシダント供給マニホルドと端部の燃料とオキシダント排出マニホルドを用いて得られる。同じセパレータープレートを用いて、セパレータープレートの対立面上の燃料とオキシダントガスの向流が、燃料またはオキシダントの一方を中央の燃料またはオキシダント供給マニホルドに通して供給し、両端部の対応排出マニホルドからガスを取り出し、他方のガスは端部マニホルドから導入し、中央マニホルドから取り出すことによって実現する。このよう

に、同じセパレータープレートの使用によって、セル外のマニホルドへの供給を変えるのみで、種々な好ましいガス流パターンが得られることが判明する。

【0037】セパレータープレートの全てのウェットシール部分に薄い金属シート材料を用いることによって、燃料セルスタック組み立て時のウェットシール部分のフレキシビリティと弾性とは制限されるために、隣接燃料とオキシダントマニホルドを分離する少なくとも1/4 inch 幅のウェットシールを横切る、ガス漏出の最少化と阻止が達成されることが判明した。本発明による薄いシート金属セパレータープレートは、良好な機械的強度を有し、製造が容易である。図6～10に示したセパレータープレートの分割流設計はプレート中央部分でマニホルド孔を囲むウェットシール部分のサポートによってセパレータープレート全体の剛性を高める。この設計は、一部のみである、この場合には、燃料セルの活性発電部分のみである電極の製造をも可能にし、電極の取り扱いを容易にし、テープキャスティングと焼結のような連続処理の小型装置による実施を可能にする。本発明の重要な特徴は1面では1セルの電解質と直接接触し、反対面では隣接セルの電解質と直接接触するセパレータープレートの平たい薄金属直立ウェットシール部分であり、燃料とオキシダント流路は燃料セルスタックのセパレータープレートと電解質のみを通過する。図11は図2に示した単位セルを含む燃料セルスタックの1実施態様を示す、燃料セルスタックの軸に沿って適当にリホーミング室が散在する。リホーミング室はアノードセパレーター/リホーマープレート40"とカソードセパレーター/リホーマープレート40'との間に配置される。セパレータープレート40、カソード27、カソード集電装置28、電解質20、アノード26及びアノード集電装置29は、図2に関して既述したものと同じであるが、この場合には反応ガスマニホルド孔50、52を備える。反応ガスマニホルドウェットシール部分51はセパレータープレート40の一般面から両面に延在して、接点(contact)を形成し、隣接電解質20とウェットシールを形成し、オキシダントと燃料マニホルドに関して上述したように、反応ガスマニホルドを画定する。反応ガスマニホルド孔50は同じ直径であるが、反応ガスマニホルド孔52は大きい直径を有し、電極と集電装置が延在反応ガスマニホルドウェットシール部分51上に適合するのを可能にし、反応ガスマニホルドウェットシール部分51の平たい面を電解質20に接触させて、ウェットシールを形成する。

【0038】延在反応ガスマニホルドウェットシール部分の側壁はセパレータープレート内の固体であり、反応ガスのアノード室またはカソード室へ侵入させない。アノードセパレーター/リホーマープレート40"は、セパレータープレート40に存在するオキシダント供給口48とオキシダント排出口48'が存在せず、従ってオキ

シダントマニホルドとアノードセパレーター/リホーマープレート40"の上面に隣接するリホーマー室との間の連絡がない点で、セパレータープレート40とは異なる。延在反応ガスマニホルドウェットシール部分51の側壁内の反応ガス口53は反応ガスマニホルド50とリホーマー室との連絡のために備えられる。同様にして、カソードセパレーター/リホーマープレート40'の下側は延在使用済み燃料マニホルドウェットシール部分45が固体側壁を有することによって、燃料排出口47'を形成せず、リホーマー室と使用済み燃料マニホルド24との間の連絡を遮断するように変えられる。反応ガス供給口53は反応ガスマニホルド50と、アノードセパレーター/リホーマープレート40"とカソードセパレーター/リホーマープレート40'との間に形成されるリホーマー室との連絡のために備えられる。標準セパレータープレート40にこれらの変更を加えることによって、完全内部マニホルド化反応ガスとスチーム供給によるリホーミング反応室が燃料セルスタックに好ましい間隔で散在される。

【0039】燃料セルスタックを組み立てる場合に、アノードセパレーター/リホーマープレート40"の周辺ウェットシール部分と全てのマニホルドウェットシール部分はカソードセパレーター/リホーマープレート40'から延在する対応ウェットシール部分と接触して、緻密な金属/金属シールを形成し、これはウェットシール部分のフレキシビリティと弾性とは制限されるために、プレート40"と40'の間の容積によって形成されるリホーマー室からのマニホルドを有効にシールする。任意に、リホーマー室を形成する延在ウェットシール部分をセパレータープレート40よりもさらに延在させて、セパレーター/リホーマープレート間の間隙を大きくし、リホーマー室容積を高めることができる。リホーマー室容積を高める他の方法は、側壁延長部をセパレーター/リホーマープレートに溶接して、リホーマー室に好ましい深さを与え、リホーマー室にクロージャーを与え、リホーマー室を通る好ましいマニホルドの通路をシールすることによって、側壁延長部をマニホルドウェットシール部分及び周辺ウェットシール部分の各々まで延在させることである。リホーマー室にこのような追加の深さを与える場合には、金属導電性ピラー(pillar)をセパレーター/リホーマープレート間の任意の間隔を置いた位置に配置して、リホーマー室構造に剛性を与え、連続発電(electrical continuity)することができる。

【0040】その軸に沿って複数のリホーミング室が散在する燃料セルスタックの本質的要素は各リホーミング室が2個のセパレーター/リホーマープレートによって形成され、その1つがアノード室に面するセパレータープレート面の外側輪郭を有し、第2がセパレータープレートの他の面の外側輪郭を有すること；カソード室；縁

部で密封結合してリホーマー室を形成する2個のセパレーター／リホーマープレート；延在マニホルドウェットシール構造を通り、反応ガス供給マニホルドからリホーマー室への反応ガスとスチーム連絡を可能にする流路及び延在マニホルドウェットシール構造を通り、燃料ガス供給マニホルドへの水素富化生成物ガス連絡を可能にする流路であり、これによって燃料セルスタック中の各リホーマー室への反応ガスとスチーム並びに各リホーマー室からの生成物ガスの完全な内部マニホルディングが形成される。

【0041】例えば、担体付きニッケルのような通常のリホーミング触媒をリホーマー室に用いて、例えば天然ガス、または天然に生成する有機炭素含有物質（石炭、シェール等）のガス化によってまたは消化によって得られる燃料のような、炭化水素材料から水素の形成のための周知のスチームリホーミング反応を実施する。メタン含有ガスのソースを用いて、炭化水素反応ガスをリホーミング室に供給することができる。

【0042】矢印によって示すように、炭化水素反応ガスとスチームを反応ガスマニホルド50からリホーマー室へ供給し、リホーマー室のリホーミング触媒上を通し、生成物ガスの水素含量を高めてから、生成物ガスを燃料供給マニホルド24へ直接供給する。このようにして、燃料供給マニホルドを通る燃料の水素含量はセルの軸に沿って高められる。

【0043】本発明によるような、燃料セルスタックの完全内部マニホルディングの可能性は燃料セルスタック内のリホーミング室分散を可能にし、リホーミング室は電気化学的に発生する熱を用いて、リホーミング反応を駆動し、セルスタックの軸に沿った燃料供給マニホルドへ水素富化燃料を供給する。燃料セル電解質からのリホーミング触媒の分離は通常のリホーミング触媒の溶融炭酸塩電解質による害を避ける。燃料セルスタック内での炭化水素物質のリホーミングによる完全内部マニホルディング燃料セルスタックは総合燃料発電セル効率を改良する。本発明によると、電気化学単位セル5〜10個毎に上記のような、リホーミング室を配置することによって、天然ガスを反応物として用いて電気化学反応のための水素富化燃料を供給することができる。

【0044】図2に示したセパレータープレート形状に関してリホーミング室の使用を上述したが、このようなリホーミング室形状が例えば図6〜10に示すような、広範囲のセパレータープレート形状にも、リホーミング室への連絡に内部マニホルドの若干を指定することによって、上記と同様に適用されることは明らかである。本発明による内部リホーミング室形成の本質的要素は、燃料供給と取り出し、オキシダント供給と取り出し、及び任意に配置され、端部プレートを介してのみ外部供給と排出流路に結合した内部マニホルドによる反応ガス供給を可能にする完全内部マニホルド化燃料セルス

タックである。

【0045】セパレータープレート／電解質ウェットシールの使用によって、燃料マニホルドとセパレータープレートのアノード面のみ連絡とオキシダントマニホルドとセパレータープレートの反対カソード面のみとの連絡が、外部マニホルドを用いた場合に不可避である孔質ガスケットなしに達成される。さらに、リホーミング室が燃料セルスタックの軸に沿って、上記のように散在する。さらに、各ガスマニホルドシール部分は腐食その他の好ましくないプロセスを減ずるために、アルミ化することができる。

【0046】本発明の完全内部マニホルディングを用いた場合に、炭酸塩テープの溶融によるセル間距離の変化が工場組み立て部位で生じ、このような溶融が生じたならば、セル間距離の変化はもはや生じない。工場から搬出されるセルスタックの高さは使用部位での压力容器内での操作中の高さと同じである。リホーミング室の高さは始動中または燃料セル操作中に変化しない。燃料セルスタック操作中に必要な唯一つのフォローアップは、活性部分とシール部分でのセル保持力の維持に要するものである。

【0047】上記説明では、本発明をある好ましい実施態様に関して述べ、多くの細部を説明のためのみ記載したが、本発明のさらに他の実施態様も可能であることは当業者に明らかであろう。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】図1は本発明の原理を説明する、単一セルの対角線（diagonal）に沿った分解側断面図であり；

【図2】図2は本発明の1実施態様による燃料セルスタックの単一セル単位の分解斜視図であり；

【図3】図3は本発明の1実施態様による燃料セルの断面側面図であり；

【図4】図4は燃料マニホルド管路からアノードコンパートメントへの開口を示す、単一セル単位の断面側面図であり；

【図5】図5はオキシダントマニホルド管路からカソードコンパートメントへの開口を示す、図4に示したセル単位の断面側面図であり；

【図6】図6は本発明による完全マニホルド化燃料セルスタックのためのマニホルドプレートの他の実施態様の正面図であり；

【図7】図7は図6に示したマニホルドプレートの反対面図であり；

【図8】図8は図6に示した8-8に沿った拡大断面図であり；

【図9】図9は図6に示した9-9に沿った拡大断面図であり；

【図10】図10は図6に示した10-10に沿った拡大断面図であり；

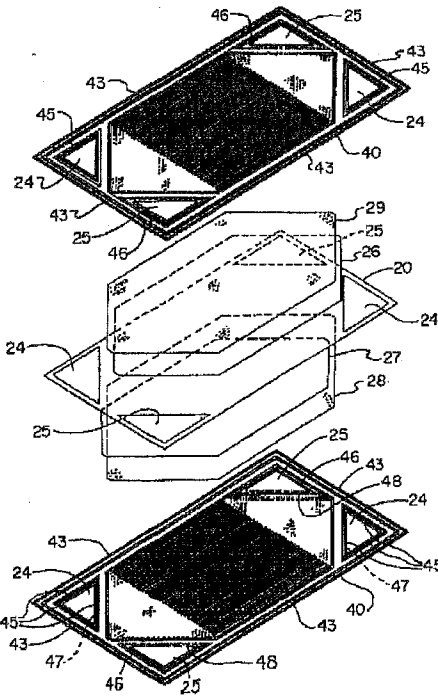
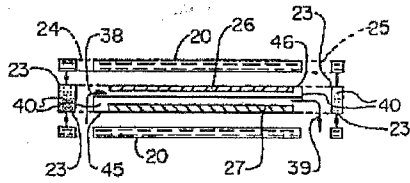
23

24

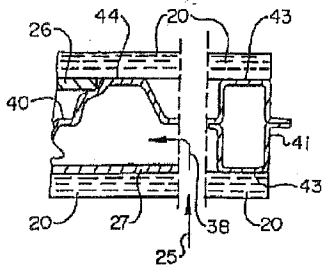
【図11】図11は本発明の1実施態様による内部リホーミング室を有する燃料セルスタックの一部の分解斜視図である。

【図1】

【図2】

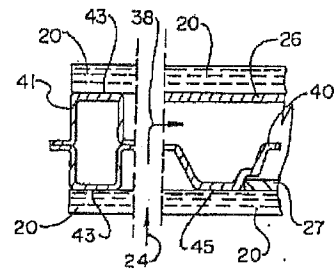
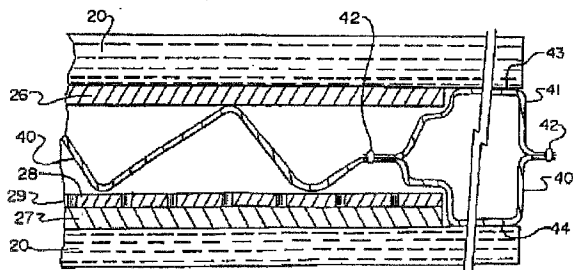


【図5】



【図3】

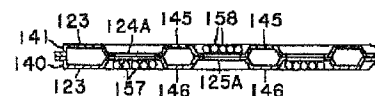
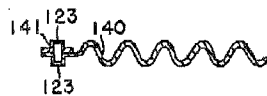
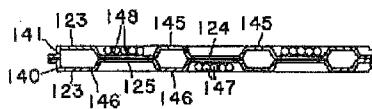
【図4】



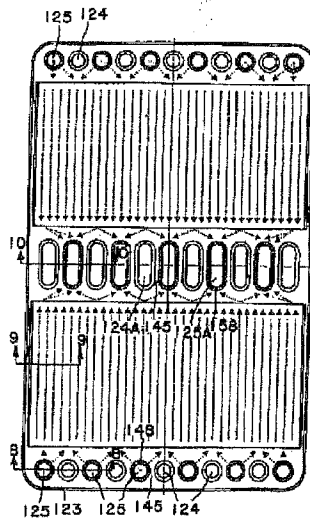
【図8】

【図9】

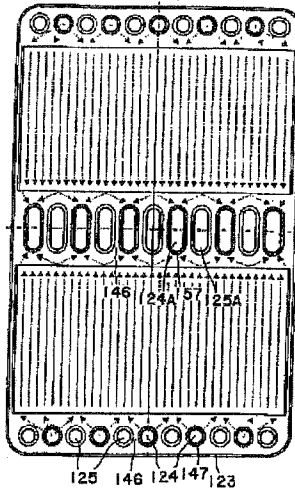
【図10】



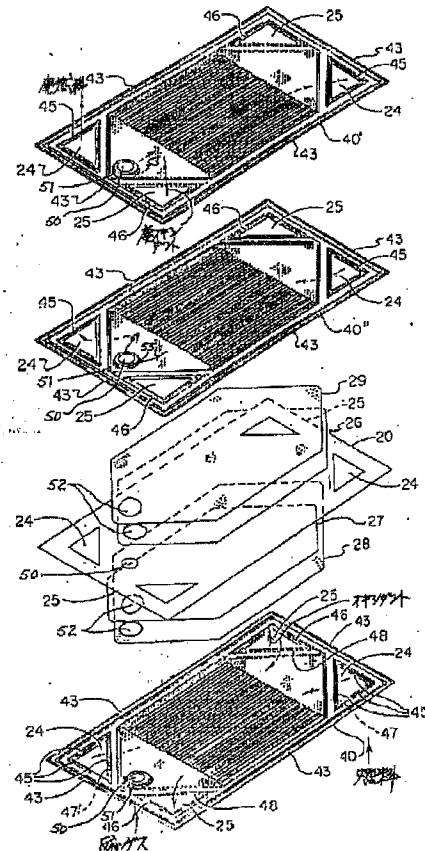
【図6】



【図7】



【図11】



【手続補正書】

【提出日】平成4年5月8日

【手続補正1】

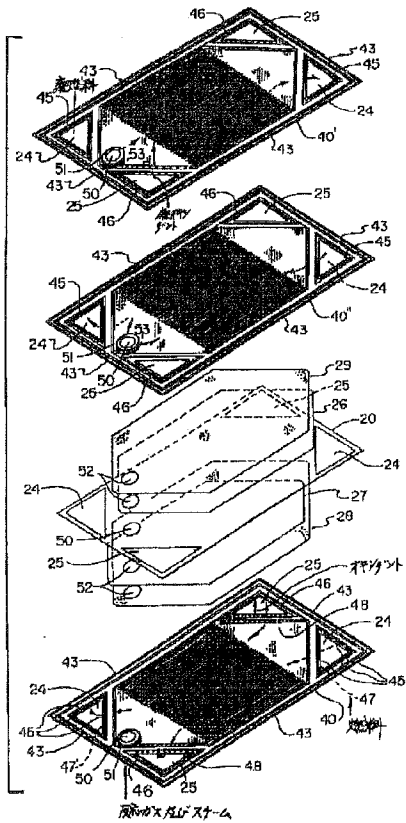
【補正対象書類名】図面

【補正対象項目名】図11

【補正方法】変更

【補正内容】

【図11】



フロントページの続き

(72)発明者 レオナード・ジー・マリアノウスキ  
アメリカ合衆国イリノイ州60056, マウン  
ト・プロスペクト, サウス・エルムハース  
ト・ロード 507

(72)発明者 ランディー・ジェイ・ベトリ  
アメリカ合衆国インディアナ州46322, ハ  
イランド, イーダー・ストリート 3223

(72)発明者 マーク・ジー・ロウソン  
アメリカ合衆国イリノイ州60402, パーウ  
ェイン, ケニルワース・アベニュー 3644